

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 15 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360266

研究課題名(和文) ナノ炭素スピントロニクスのためのフラレン-遷移金属複合系スピン注入源の研究

研究課題名(英文) Fullerene-transition metal hybrid spin injector for nanocarbon spintronics

研究代表者

境 誠司 (SAKAI, Seiji)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・グループリーダー

研究者番号：10354929

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 9,000,000円

研究成果の概要(和文)：グラフェンやフラレンなどナノ炭素材料は次世代スピントロニクスの候補材料として有望である。本研究では、強磁性金属電極に代わるスピン注入源として、フラレン-遷移金属化合物と強磁性金属からなる複合構造に着目し、同構造の物性探索と電極応用に向けた基礎研究を行った。

フラレンと鉄ナノ粒子からなる複合系薄膜の磁気伝導特性を調査し、フラレン/鉄界面は伝導電子のスピン偏極率を増大するスピフィルターとして働くことを明らかにした。さらに、C60単分子層/鉄薄膜の深さ分解X線磁気円二色性分光の実験と理論計算を実施し、界面においてC60の電子状態が著しく変化しスピン分裂が生じることを示した。

研究成果の概要(英文)：Nanocarbons including graphene and fullerenes attract considerable attention as promising candidate materials for future spintronics. In this project, we investigated spintronic properties of fullerene(C60)-transition metal hybrid structures for realizing highly-efficient spin-injection electrodes for nanocarbons.

Our magnetotransport study of the granular-structured hybrid thin films composed of C60 and iron nanocrystals clarified that the spin polarization of the conduction electrons in the hybrid film is remarkably enhanced due to the spin-filtering effect of the C60/Fe interface. Furthermore, according to the depth-resolved XMCD spectroscopy and theoretical calculations, it was demonstrated that at the C60/Fe interface the electronic states of C60 is significantly modified and a visible spin polarization is induced into C60 by the interfacial interactions between C60 and Fe.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：フラレン ナノ炭素 スピントロニクス グラフェン 分子スピントロニクス 界面 X線吸収 X線磁気円二色性

1. 研究開始当初の背景

微細加工技術の発展と共に進歩してきたエレクトロニクスは、近い将来に技術上の限界に達することが必至である。これに対するブレークスルーとして、電子スピンを操作して情報伝達・処理を行うことで飛躍的な機能向上を実現する新技術「スピントロニクス」が注目を集めている。

申請者は、新たなスピントロニクス材料としてフラーレンに注目し、世界に先駆けてフラーレン-遷移金属系の研究に取り組んできた。フラーレンは電子受容性に富み、分子形状の高対称性や高い構造安定性など、電子機能性の材料として優れた資質を有する。加えて、炭素の π 軌道が電子輸送を担うため、伝導電子に働くスピン-軌道相互作用や核スピンの影響が小さく、電子スピンの散乱が生じ難い。後者の特徴は、昨今、注目を集めるグラフェンについても同様である。グラフェンは π 軌道の二次元的な拡がりとディラックコーンと呼ばれる π バンド構造から、高移動度や長いスピン拡散長を特長とするスピン輸送媒体として期待されている。フラーレンについても、長いスピン緩和時間に加えて無機半導体と同程度の電子移動度を示すことから、スピン蓄積効果が大きなスピン輸送媒体として有望である。

しかし、強磁性金属電極をスピン注入源に用いた先行研究では、ナノ炭素への高スピン偏極率・低抵抗なスピン注入(高効率スピン注入)が実現できず、応用の障害となっている。

2. 研究の目的

本研究は、集積型スピン論理回路などに適したスピン輸送媒体として期待されるナノ炭素(フラーレン及びグラフェン)のスピントロニクスへの応用を拓くため、応用上の関門であるナノ炭素への高効率スピン注入の実現を目的に行う。

ナノ炭素へのスピン注入は、強磁性金属電極を用いた先行研究で注入電子の低スピン偏極率や高い注入抵抗など困難が露見している。このような状況に対して、申請者は、電極内で誘起した高スピン偏極電子をスピン散乱を抑えながら注入できる電極構造として、フラーレンと強磁性遷移金属からなる複合系積層構造のスピン注入への応用を提案する。

微視的状态が同様な試料についてスピン輸送に関する物性研究と同特性を司るフラーレン/遷移金属界面の電子スピン状態に関する分光研究を互いに照合しながら進めることで、人為的な特性制御や原因機構の解明に繋げる。

3. 研究の方法

1. フラーレン-鉄複合薄膜の磁気抵抗効果

C_{60} と強磁性のFeナノ粒子からなる C_{60} -Fe複合系薄膜を作成しスピンに依存する磁気伝導特性を評価することで、薄膜内の伝導電子のスピン偏極状態の知見を得た。

2. フラーレン/鉄積層構造の深さ分解 X 線磁気円二色性分光

Fe 薄膜上に厚さ(単分子層-多分子層)を制御した C_{60} 超薄膜を成長し、 C_{60}/Fe 界面近傍の電子スピン状態を深さ分解 X 線磁気円二色性分光によるその場実験で調べた。

4. 研究成果

1. フラーレン-鉄複合薄膜の磁気抵抗効果

超高真空中で組成を制御して C_{60} とFeを共蒸着することで、 C_{60} を主な成分とする薄膜中にFeナノ粒子が分散したグラニューラ状の C_{60} -Fe複合薄膜を作成した。

C_{60} -Fe複合薄膜の磁気伝導特性を評価した結果、同薄膜が、Feナノ粒子間のトンネル伝導によるトンネル磁気抵抗効果を示すことが分かった。磁気抵抗率(磁場による電気抵抗変化/電気抵抗の最大値)は、低温、低印加電圧の条件で50%以上に達した(図1)。磁気抵抗率の大きさにナノ粒子間の高次トンネリングの影響を考慮することでトンネル伝導を生じる伝導電子のスピン偏極率(C_{60}/Fe 界面のスピン偏極率に相当。以下、界面スピン偏極率)を求めた。界面スピン偏極率(最大70%)は、Fe結晶のスピン偏極率(30-40%)より著しく高く、 C_{60}/Fe 界面が伝導電子のスピン偏極を増大させるスピンフィルターとして働くことが示唆された。類似の効果は C_{60}/Co 界面にも見いだされた。

これら一連の結果から、フラーレン-遷移金属複合系構造のスピン注入源としての有用性が明らかになった。

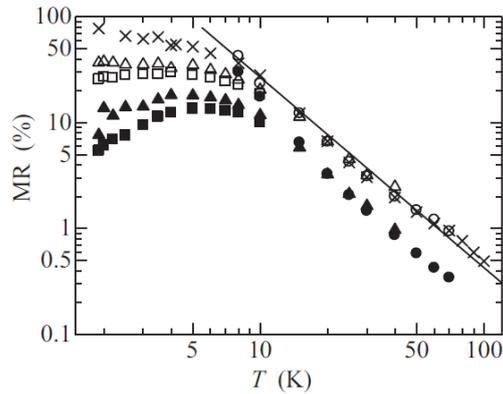


図 1 Fe ナノ粒子を含む C_{60} -Fe 複合薄膜(組成: $C_{60}Fe_7$)について観測された磁気抵抗率の温度依存性。印加電圧: 20 V(丸), 60 V(三角), 80 V(四角), 0 V への外挿値(\times), 中塗, 中空は印加磁場 10 kOe, 70 kOe でのデータを示す。(外挿値は 70kOe のデータのみ)

2. フラーレン/鉄積層構造の深さ分解 X 線磁気円二色性分光

C_{60}/Fe 界面における伝導電子の高スピン偏極率の原因究明を目的に界面領域の電子スピン状態を調査した。

MgO(001)単結晶薄膜上に鉄(001)エピタキシャル薄膜を成長した上に厚さを単分子層-多分子層の範囲で制御して C_{60} 超薄膜を成長し、高エネ研・フォトンファクトリー(BL-7A)にて、深さ分解 X 線磁気円二色性分光の実験を行った。

その結果、 C_{60}/Fe 界面では、Fe との相互作用により C_{60} の最高被占有軌道(HOMO)-最低空軌道(LUMO)のギャップ内や LUMO の直上に新たな電子状態が生じることなど、 C_{60} 分子の電子状態が大きく変化することが明らかになった(図 2)。理論計算の結果、これらの状態は Fe との交換相互作用によりスピン分裂を生じることや、特に C_{60} 分子内の界面に近い領域にはフェルミレベルに著しくスピン偏極した状態が存在することが示された。

以上の結果から、 C_{60}/Fe 界面では Fe により変調された C_{60} 分子の電子状態を介して伝導電子にスピン偏極が誘起されることが推察される。

その他、フラーレンとは異なるナノ炭素材料としてグラフェンと強磁性金属(Ni)の界面の電子スピン状態についても、深さ分解 X 線磁気円二色性分光による調査を行い、界面におけるスピン配列の変化(垂直磁気異方性の発現)を見いだした。

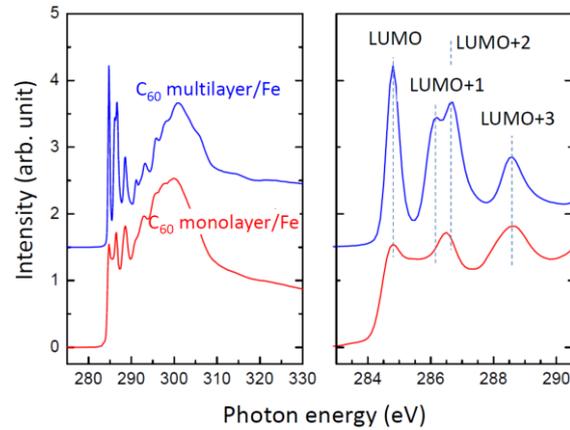


図 2 C_{60} 単分子層/ $Fe(001)$, C_{60} 多分子層/ $Fe(001)$ について測定した C_{60} の電子状態を表す C K 吸収端 X 線吸収スペクトル(左)と π 軌道領域の拡大図(右)

C_{60} 多分子層/ $Fe(001)$ 試料が C_{60} 単体と類似のスペクトルを示すのに対して、全ての C_{60} 分子が Fe と界面で接する C_{60} 単分子層/ $Fe(001)$ 試料では、フェルミレベルに近いエネルギーレベル(~ 284 eV)や LUMO 直上の領域(~ 285.5 eV)に界面に特有な電子状態の存在を示す成分が見られる。理論計算の結果から、これらの状態はスピン分裂していることが予想される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① High spin polarization at the Fe/C₆₀ interface in the Fe-doped C₆₀ film, S. Sakai, Y. Matsumoto, M. Ohtomo, S. Entani, P. V. Avramov, P. B. Sorokin, H. Naramoto, Synthetic Metals 173, 22-25 (2013).
- ② Spin orientation transition across the single-layer graphene/nickel thin film interface, Y. Matsumoto, S. Entani, A. Koide, M. Ohtomo, P. V. Avramov, H. Naramoto, K. Amemiya, T. Fujikawa, S. Sakai, J. Mater. Chem C 1, 5533-5537 (2013).

[学会発表] (計 4 件)

- ① S. Sakai, Carbon-based hybrid structures for spintronics, 2nd International Symposium on Nanoparticles/Nanomaterials and Applications, Jan 16-21, 2016 (Lisbon, Portugal) 招待講演
- ② 境 誠司, 分子スピントロニクスと界面スピン物性, 第 59 回物性若手夏の学校, 2014 年 7 月 29 日-8 月 2 日(浜松市) 招待講演
- ③ S. Sakai, High interface spin polarization and its mechanism in fullerene-magnetic metal systems, 4th Worldwide University Network International Conference on Spintronics, July 23-25, 2012 (Sydney, Australia) 招待講演
- ④ S. Sakai, S. Mitani, Y. Matsumoto, M. Ohtomo, S. Entani, P. V. Avramov, H. Naramoto, T. Fujikawa, High spin polarization of tunneling electrons at the interfaces in fullerene-magnetic metal systems, 4th International Meeting on Spins in Organic Semiconductors, September 10-13, 2012 (London, England).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

境 誠司 (SAKAI, Seiji)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・先端基礎研究センター・リーダー

研究者番号：10354929

(2)研究分担者

圓谷 志郎 (ENTANI, Shiro)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・先端基礎研究センター・副主任研究員

研究者番号：40549664

(3)連携研究者

()

研究者番号：